

# インサート金属の固液共存域を利用した接合性の改善 - アルミニウム青銅とステンレス鋼の拡散接合 (第7報) -

著者	益本 広久, 浅田 明弘
雑誌名	久留米工業大学研究報告
号	17
ページ	11-23
発行年	1993-12-20
URL	<a href="http://id.nii.ac.jp/1503/00000234/">http://id.nii.ac.jp/1503/00000234/</a>



# インサート金属の固液共存域を利用した接合性の改善

——アルミニウム青銅とステンレス鋼の拡散接合 (第7報) ——

益本 広久\*・浅田 明弘\*

## Amelioration of Bondability of Aluminum Bronze to Stainless Steel using of Solid-liquid Phase of Insert Metals

——Diffusion Bonding of Aluminum Bronze to Stainless Steel (Report-7)——

Hirohisa MASUMOTO and Akihiro ASADA

### Synopsis

In the dissimilar metal joining of aluminum bronze to austenitic stainless steel, effect of insert metal being solid or solid-liquid phases on the bondability was examined. Bonding tests were performed in a vacuum environment of the order of 50mPa at the bonding temperatures  $T=1003$  to  $1263\text{K}$  and at the bonding pressures  $P=1$  to  $10\text{MPa}$  or restrained bonding. In this paper, influences of bonding time, bonding temperature and bonding pressure on the joint strength and fatigue limit were investigated using phosphor bronze, and some Cu-Sn, Cu-Ag alloy foil and then Cu-0.2mass%Ce foil, as an insert metal.

Results obtained are summarized as follows;

- (1) In case of P-bronze being heated at solid-liquid region temperatures  $T=1153$  to  $1263\text{K}$ , the part of fused structure at the grain boundary increased with increasing the heating temperature.
- (2) In the seal bonding using P-bronze foil at  $1263\text{K}$ , the fused structure increased with increasing the bonding time, maximum value of fused structure of about 24% was obtained at the bonding time of 60s.
- (3) In the bonding pressure being 1 MPa, the maximum joint strength of about 415 MPa was obtained at  $1263\text{K} \times 0\text{s}$ , but the joint strength decreased with increasing the bonding time. And also, the fused structure formed at bond interface of P-bronze/SUS304 at bonding time  $t=0$  to 60s.
- (4) In the restrained bonding, the joint strength decreased with increasing the bonding time being 20s below. On the other hand, the bonding time increasing 40s over, the joint strength was increased as an increase of bonding time and the maximum joint strength of 465 MPa was obtained at  $1263\text{K} \times 300\text{s}$ , and it was determined by the amount of fused structure in the insert foil on solid-liquid bonding.
- (5) In the joint using Cu-Sn alloy foils at the bonding temperature of  $1263\text{K}$ , the peak joint strength was obtained at bonding time of 150s with Cu-2.5mass%Sn and Cu-5.9mass%Sn.
- (6) In the joint using Cu-Ag alloy foils at the bonding temperature of  $1263\text{K}$ , the maximum joint strength of about 510MPa was obtained at the bonding temperature of  $1253\text{K}$  and bonding time of 3000s with Cu-6mass%Ag.
- (7) In the joint, with some insert metals, having the tensile strength from 300 MPa to 460 MPa, the fatigue limit of joint which bonded at solid-liquid phase of P-bronze foil was higher than those of the joints bonded at solid phase of P-bronze and Cu foil.

\*機械工学科

平成5年9月2日受理

## 1. 緒 言

著者らは溶融溶接が困難なアルミニウム青銅とオーステナイト系ステンレス鋼の接合に拡散接合法を適用し、接合部強さに及ぼす接合条件の影響について検討を行ってきた<sup>1)~6)</sup>。直接接合では、アルミニウム青銅の表面に酸化物  $Al_2O_3$ <sup>1)</sup> が形成されると共にアルミニウム青銅中の Al がステンレス鋼側へ拡散<sup>2)</sup> するために接合部にボイドを生じ、最も高い接合部強さでも約 300MPa とアルミニウム青銅の母材強さの約 50% と低い継手効率であった<sup>2)</sup>。

そこで、Al の拡散を阻止し、しかも接合面の密着性を改善するために、接合時に固相のままの Cu 及び Ni 箔を用いた接合を行った。その結果、接合界面に若干の酸化物<sup>7)</sup>あるいはカーケンドールボイドが形成<sup>8)</sup>されるが、継手効率は約 65% まで改善された。また、Cu-Ag 系及び Cu-Ni 系の二元合金を用いて接合を行うと一部接合界面の消失が観察され、特に、200  $\mu$ m の Cu-3.35mass%Ag 箔を用いた接合では、1800s の長時間接合を必要とするものの接合部強さ及び継手効率は約 480MPa 及び約 78% まで改善された<sup>4)</sup>。しかしながら、接合部には微少なボイドが見られ、主に接合部から破断した。これに対して、接合時に一部液相を生じるりん青銅(以下、P-bronze と記す)<sup>9)</sup>及び Cu-Ce 二元合金<sup>6)</sup>を利用した固液相接合では、接合面の密着性が改善されると共に接合界面の一部が消失し、60s の短時間接合で 400MPa 以上の高い接合部強さが得られることを明らかにしている。しかし、接合性に及ぼす液相の影響及び接合時の液相の挙動は不明である。

接合界面が消失する接合方法としては液相拡散接合法があり、本接合法を利用して同一材料の接合を行うと母材強度に匹敵する高い接合部強さが得られることが明らかにされている<sup>7)</sup>が、本接合法は高温に長時間加熱を行う必要がある。また、その接合性を阻害する拡散層が生成するような異種金属の接合に適用した報告は少ないようである<sup>8)</sup>。異種金属の接合に液相を利用する接合方法としては、松田ら<sup>9)</sup>により接合材の一部が溶融する瞬間液相接合法が開発され、接合材の母材強度に匹敵する接合部強さが得られているが、この接合法を利用するには、融液が生じた後に急冷する必要がある。液相が生じると接合部の密着性が改善されるために、圓城ら<sup>10)</sup>は Al-Cu-Mg 系合金同士の接合を固液共存域で行い液相量が 2~3% の場合に最も高い接合部強さが得られることを

報告している。しかし、液相量が多くなると結晶粒界上にボイドを生じ母材の劣化が生じるようになる。

そこで、本研究は固液共存域の広い Cu-Sn 系合金である市販の P-bronze 箔を用い、従来検討を行っていない条件で固液相接合を行った継手の接合性に及ぼす液相の影響について検討を行うと共に固液相接合が可能な自家製の Cu-Sn 二元合金、Cu-Ag 二元合金及び Cu-Ce 二元合金を用いた接合についても検討を行った。また、固液相接合材は、接合面の密着性が改善されるためにインサート金属の固相域を利用した接合材よりも動的強さは高いものと考えられる。このために、引張試験及び疲労試験による継手強度の評価を行った。

## 2. 供試材料及び実験方法

アルミニウム青銅及びオーステナイト系ステンレス鋼は既報<sup>3)</sup>とほぼ同じ組成を持つ直径 10mm の市販の丸棒を用いた。固液共存域を利用した接合に用いたインサート金属は組成が Cu-5.9mass%Sn-0.08mass%P の市販の P-bronze 箔を用いると共に自家製の Cu-Sn 二元合金、Cu-Ag 二元合金及び Cu-0.2mass%Ce 合金を用いた。Cu-Sn 二元合金としては、Sn 量を 0.28~10mass% の範囲内で、Cu-Ag 二元合金としては、Ag 量を 6~40 mass% の範囲内で数水準変化させた合金箔を既報と同様の方法で溶製した後、厚さ 100 $\mu$ m に冷間加工した。そして、これと比較する固相域を利用したインサート金属には、市販の純 Cu 箔及び既報で接合性の改善が認められた自家製の Cu-1.1mass%Ni 及び Cu-4 mass%Ag 箔を用いた。Fig. 1 は溶製した Cu-Sn 及び Cu-Ag 二元平行状態図<sup>11)</sup>の一部を示す。Fig. 1 (a) は Cu-Sn 合金状態図であるが、Cu-Sn 二元合金及び P-bronze 箔を用いた接合は P-bronze の固液量が約 50% となる温度 1263 K 一定で行った。また、Cu-Ag 合金を用いた接合は固相、固液相及び液相の状態となる温度で接合温度を変化させた。

接合は既報<sup>3)</sup>と同じ装置を用いて行った。接合雰囲気は約  $5 \times 10^{-2}$  Pa とし、16.5K/s で所定の温度まで加熱を行った。Cu-Sn 及び Cu-Ag 合金箔以外の接合は接合温度  $T_B$  は 1073~1263K の範囲内で変化させた。また、接合時間  $t_B$  は 0s~10000s の範囲内でそれぞれ数水準変化させた。接合圧力  $P_B$  は、接合材の両端を予め拘束しておき、加熱を行うことで接合面に熱応力を発生させる拘束接合法<sup>2)</sup>と加熱の前から一定の荷重を加えておく定荷重接合法を用いて加えた。定荷重はてこ式により加えたが、

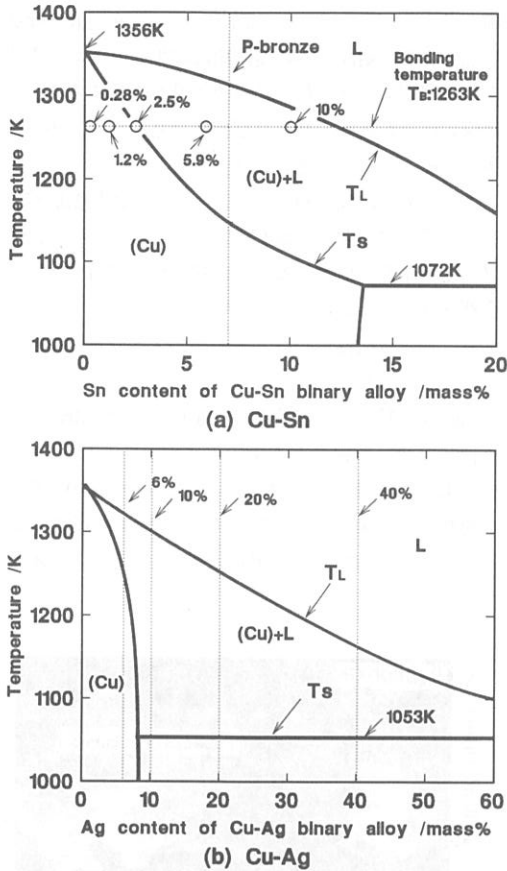


Fig. 1 Binary phase diagram of insert metals used (a) Cu-Sn (b) Cu-Ag

接合温度が1100K 以上になるとアルミニウム青銅の変形が大きくなる<sup>2)</sup>ため、1100K 以上で接合を行う場合、アルミニウム青銅の変形によりてこが一定の位置まで降下すると荷重が加わらないようにした。固液相接合を行った接合部の凝固組織の割合は、アルミニウム青銅とステンレス鋼の接合界面に直径6mm、厚さ30 $\mu$ m のP-bronze箔を挿入し、拘束接合を行うことで液相の漏出を阻止した封入接合材の接合部中央を写真撮影した後、画像解析を行うことで算定した。凝固組織の面積は接合部の中央部分約2mm のマイクロ組織の画像解析により求めたが、中央部の温度と制御温度の加熱速度及び保持温度は等しかった。この接合体に封入接合を行った場合、P-bronze の固相線温度よりも低い温度である1100K に加熱されるとアルミニウム青銅が容易に塑性変形し、ステンレス鋼と密着する。このために、液相は接合部に留められ、接合と同じ熱サイクルを付加されたときの凝固組織の割合を測定することができる。

接合性の評価は、接合部及び破断部のマイクロ組織観察及びSEM による破面の観察を行うと共にEPMA による線分析を行った。また、インストロン型引張試験機を用いた引張試験及び小野式回転曲げ疲労試験機を用いた疲労試験により接合部強さの測定を行った。

### 3. 実験結果

#### 3. 1 インサート金属の熱処理組織及び接合部の液相量 P-bronze を固液共存域に加熱した際の組織的な変化

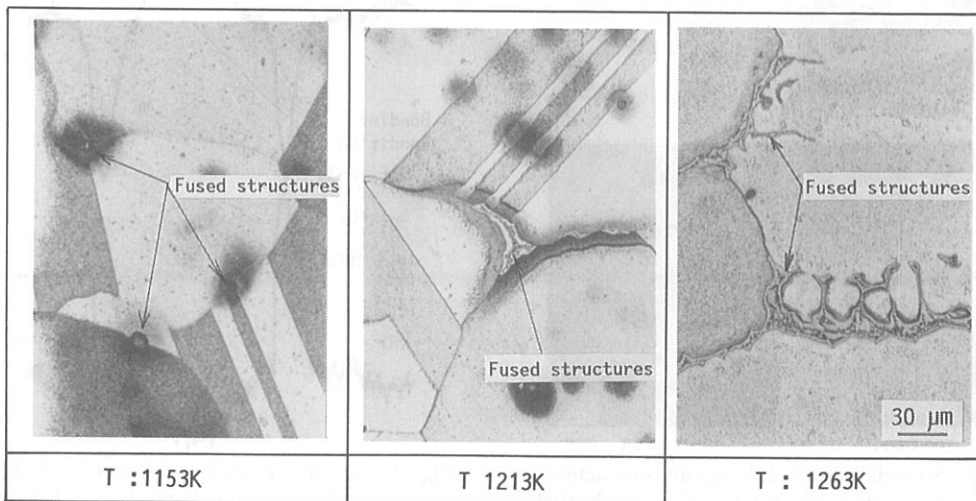


Fig. 2 Microstructures of P-bronze heated at 1153K, 1213K and 1263K

を観察するために、厚さ $300\mu\text{m}$ のP-bronzeを $5\times 10^{-2}$  Paの雰囲気炉中で、無加圧のまま熱処理を行った。熱処理は $1073\sim 1353\text{K}$ の範囲内で $10\text{K}$ ごとに加熱温度を変化させ、 $0.6\text{ks}$ の保持を行った。

Fig. 2は $1153$ ,  $1213$ 及び $1263\text{K}$ に加熱したP-bronzeの室温におけるミクロ組織を示す。 $1153\text{K}$ に加熱したとき、P-bronzeの結晶粒界にポイドを伴う新たな組織が観察されるようになった。そして、その組織の占める割合は、図に見られるように加熱温度の上昇と共に増加し、 $1293\text{K}$ 以上に加熱した場合、鑄造組織が観察された。このために、本実験で用いたP-bronzeの固相線及び液相線温度は、それぞれほぼ $1153\text{K}$ 及び $1293\text{K}$ であると考えられる。なお、液相線の温度がFig. 1(a)中における温度と異なるのは、P-bronzeがCu-Sn二元合金ではなく、 $0.08\text{mass\%}$ のPを含むためである。

Fig. 3は、P-bronzeを $1263\text{K}$ に $600\text{s}$ 加熱したときの二次電子像及びSnの特性X線像を示す。二次電子像に見られるように結晶粒界に組成割合が異なる組織が観察され、その中心部分にはSn濃度の高い柱状の組織が見られる。このために、Fig. 2中の新たな組織は固液共存域に加熱された際に生じた、Snに富む液相が凝固した組

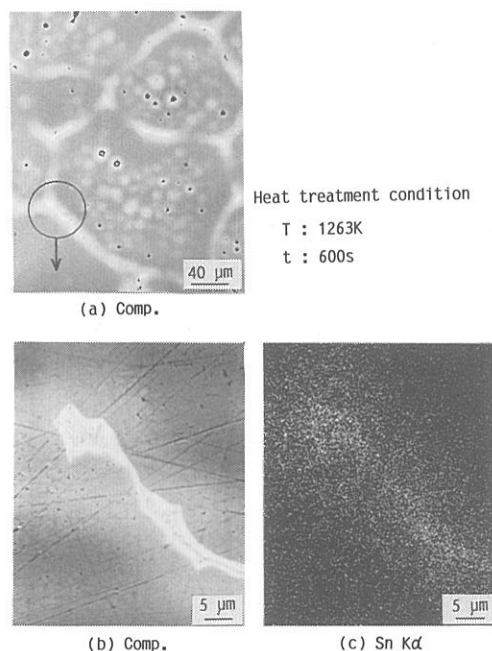


Fig. 3 Secondary electron image and characteristic X-ray image of Sn on P-bronze heated at  $1263\text{K}\times 600\text{s}$

織と考えられる。このように、P-bronzeを固液共存域まで加熱すると結晶粒界に凝固組織が生じるため、固液共存域を利用した接合材中に凝固組織が残留すると、凝固組織の部分がき裂の発生及び伝播経路となり、接合部の劣化を招くものと推察される。

このために、固液相接合を行う場合、液相拡散接合のように接合界面間の距離を一定に保った接合では、Snに富んだ液相及び周囲の軟化域が接合部に残留し、高い接合部強さは得られないものと考えられる。そこで、本論における固液相接合では、接合部にストッパーを挿入しないこととした。

Fig. 4は $1\text{MPa}$ の定荷重接合を利用し、 $1263\text{K}\times 40\text{s}$ の条件で接合した接合部近傍の二次電子像及びEPMA分析結果を示す。図に見られるように、 $1\text{MPa}$ の定荷重接合を利用した接合では、ステンレス鋼との接合部にはポイドを伴うSnに富んだ凝固組織が生じる。この凝固組

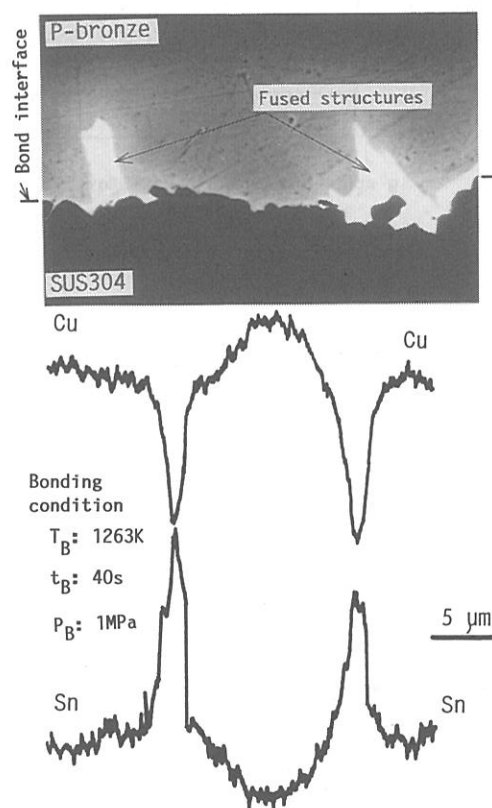


Fig. 4 Secondary electron image and EPMA analysis of near bonded zone between P-bronze and SUS304

組織は、接合時間が0sでも観察され、接合時間の増加と共に増加した。凝固組織は接合時間が40s以下の場合、P-bronze 中及びステンレス鋼との接合界面に観察され、接合時間が100s以上になると観察されなくなった。また、接合時間が60s以上になるとステンレス鋼との接合部側のP-bronze 側には、ボイドを伴う (Sn, Ni) の富化層が観察されるようになった<sup>12)</sup>。

Fig. 5 は拘束接合材及び封入接合材の接合部近傍のマイクロ組織を示す。図に見られるように拘束接合を利用した接合では、接合時間の経過と共に接合界面間の距離が狭くなる。また、P-bronze 箔とアルミニウム青銅との境界では連続した結晶が観察されるようになると共に接合界面は接合時間が60s以上では観察されなくなった。それに対して、封入接合材の接合界面間の距離は接合時間が長くなってもほぼ一定であり、P-bronze の部分には凝固組織が観察される。そこで、封入接合材の接合部に生じる凝固組織の占める面積を求めた。

Fig. 6 は接合と封入接合材の凝固組織の占める割合 VSS と接合時間の関係を示す。接合部の凝固組織は、加熱処理時間が0s で約3%観察されると共に加熱処理時間が40s までは時間の経過と共に直線的に増加し、60s の接合で約24%観察された。しかし、100s 以上の保持では減少に転じ、保持時間300s で約16%となったが、これは

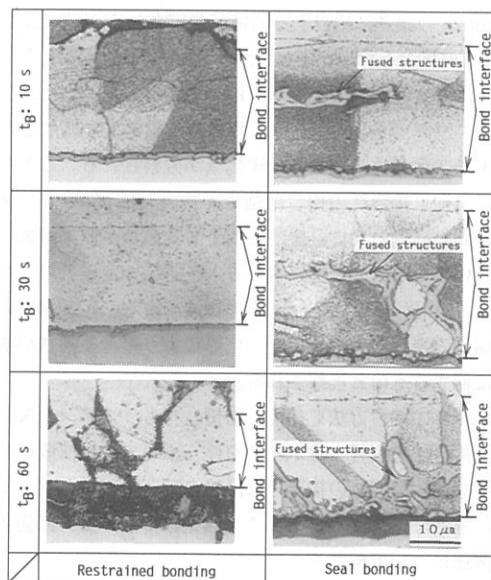


Fig. 5 Microstructures of bonded zone of joints with P-bronze foil at 1123K

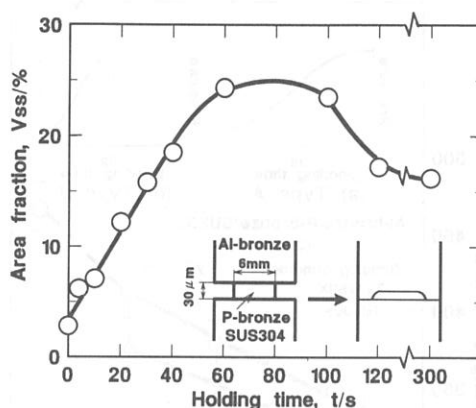


Fig. 6 Relation between Vss and bonding time of joints at 1263K by sealed bonding

Sn がアルミニウム青銅及びステンレス鋼側へ拡散したために生じたものである。

以上のように、P-bronze 箔を固液共存域に加熱した場合、結晶粒界に液相が生じ、その液相は接合温度の上昇と共に増加し、接合部にはボイドを伴う凝固組織を形成するようになる。このような傾向は、Cu-Sn, Cu-Ag 及び Cu-0.2mass%Ce を固液共存域に加熱した場合も同様に生じた。

### 3. 2 P-bronze を利用した接合

Fig. 7 は接合部強さに及ぼす接合圧力の影響を示す。接合は1263K×300ks の条件で行った。加圧は、加熱の前から所定の荷重を加え続ける接合方法 Type A と接合温度に到達直後、所定の荷重を加える Type B の二種類の付加の方法を利用して付加した。図に見られるようにいずれの接合でも、接合部強さは接合圧力の上昇と共に直線的に増加したが、Type A の方が高い接合部強さが得られる。図中に示す (a) 及び (b) 図は、Type A 及び Type B の接合圧力と接合時間の関係を示す。Type A ではアルミニウム青銅の塑性変形に伴い接合温度に到達前に圧力が低下する。このように、Type A 材の方が接合中に加わる接合圧力が低くても、接合部強さが高いのは、Fig. 6 に見られたように、接合時間が0s で既に液相が生じていることから、接合温度に到達前に液相の排出を開始するためと推察される。また、接合圧力が大きくなるほど接合部強さの差が大きくなることから、Type B の接合では接合温度に到達直後に大きな圧力を加えられる結果、アルミニウム青銅の塑性変形が短時間で終了する。このために、Type A に比較すると液相の排出量が少な



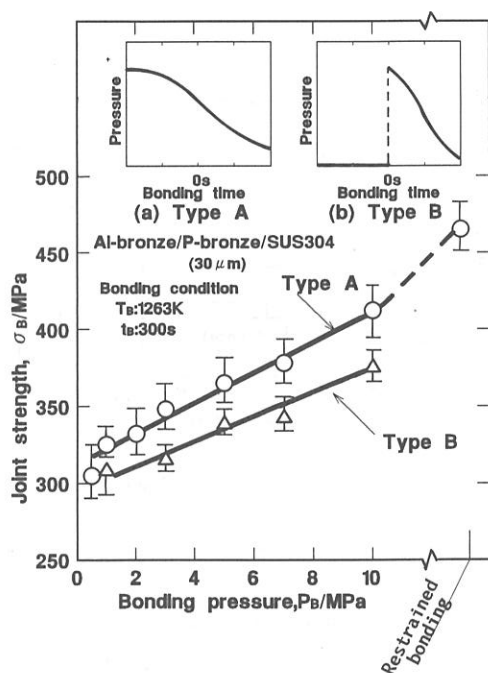


Fig. 7 Effects of pressure technique and bonding pressure on joint strength of joint with P-bronze foil at 1263K $\times$ 300s

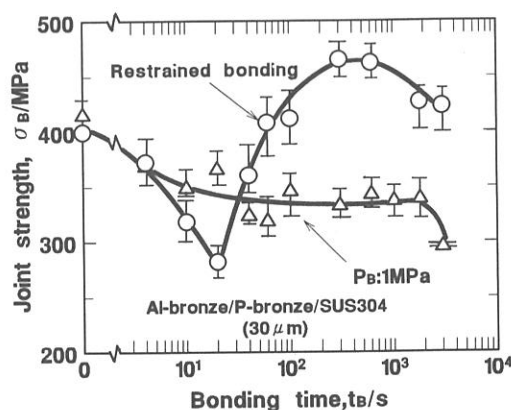


Fig. 8 Effects of bonding pressure and bonding time on joint strength of joints with P-bronze foil

いものと考えられる。そこで、以下の定荷重接合は Type A を利用した接合を行った。

Fig. 8 は接合部強さに及ぼす接合時間の影響を示す。ここで、接合面の表面粗さ及び接合温度は Rz0.3 $\mu$ m $\times$ 1263K である。接合は 1 MPa の定荷重接合法と最大で

30MPa の荷重が加わる拘束接合法を用いて行った。

定荷重接合材の接合部強さは、0s で最も高い接合部強さ約 415MPa が得られるが、接合時間が 10s $\sim$ 1800s の範囲内では約 340MPa 一定となった。引張破断は接合時間が 40s 以下では、主に P-bronze / アルミニウム青銅の部分から、60s 以上になると P-bronze / ステンレス鋼の部分から生じていた。

次に、拘束接合材の接合部強さは、接合時間が 0 及び 4s では定荷重接合材とほぼ等しい値が得られたが、接合時間が 10 及び 20s の接合では定荷重接合材よりも低い約 290MPa へと急激に低下した。しかし、60s 以上の接合材は、1 MPa の接合よりも高い接合部強さが得られるようになり、300s の接合で最も高い値約 460MPa が得られた。しかも、3600s の長時間の接合でも約 420MPa の高い接合部強さが得られた。引張破断は接合時間が 20s 以下の場合、アルミニウム青銅 / P-bronze の部分から全て生じ、その破面には研磨傷に相当する凹凸が観察された。接合時間が 60s 以上になると一部ステンレス鋼との接合部から破断し、1800s 以上の接合材では主にステンレス鋼との接合部から生じた。

Fig. 9 は拘束接合材の接合部近傍の EPMA 分析結果及び硬さ分布を示す。接合時間が 20s までは、P-bronze 内の Sn のピーク値は接合前の P-bronze の Sn 量に相当する値が得られた。また、硬さ分布に見られるように接合時間が 20s までは、アルミニウム青銅側の接合部に P-bronze の硬さに相当する領域が測定される。しかし、40s 以上の接合を行った場合、Sn はほとんど観察されなくなり、接合界面間の距離もほぼ一定になった。また、アルミニウム青銅側の Al がステンレス鋼側まで拡散した結果、ステンレス鋼側には硬化域が観察される。このために、拘束接合材の接合部強さが接合時間が 20s まで接合時間の経過と共に直線的に低下するのは、液相の排出が続いているためと推察される。そして、40s 以上の接合では、液相がほぼ消失し、Al の拡散によるアルミニウム青銅側の接合部の硬さの均一化等により接合部強さが増加に転ずるものと推察される。

いずれの接合方法を利用した接合材も、ステンレス鋼側に接合性を阻害するボイドを伴う極めて硬い拡散層を生じない短時間側の接合では、接合時間の経過と共に接合部強さは低下する。そこで、液相の排出と接合部強さの関係について検討を行った。

Fig. 10 は接合界面間の距離と接合部強さの関係を示す。ここで、整理を行った接合部強さは、接合界面間の

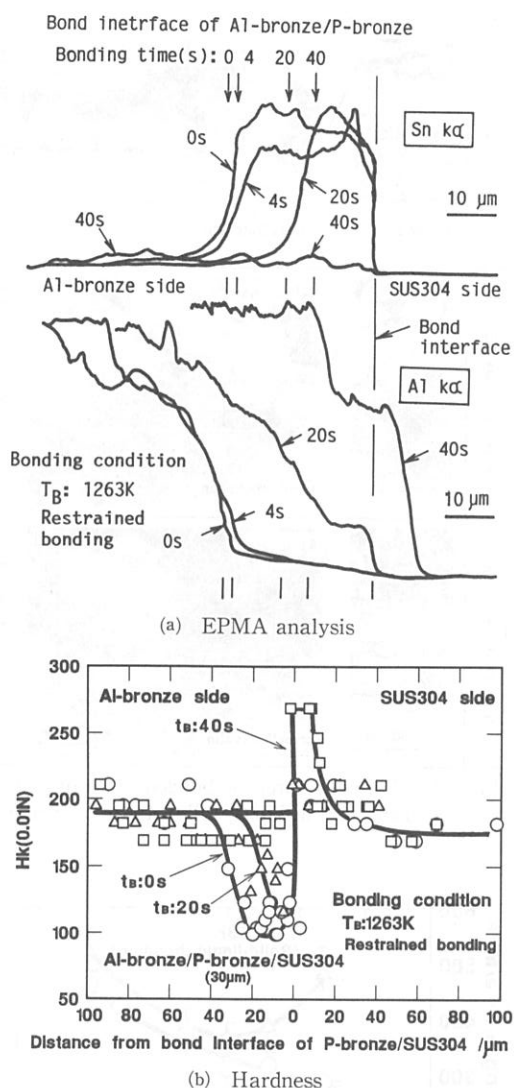


Fig. 9 Effect of bonding time on the EPMA analysis and distribution of hardness of near bonded zone of joints with P-bronze foil at 1263K (a) EPMA analysis (b) Hardness

距離が一定になるまでの接合材に限定している。図に見られるように接合部強さは、界面間の距離の減少と共に直線的に低下することが明らかになった。

以上のことから、接合時間が30sでいずれの接合においても約415MPaの高い接合部強さが得られたのは、微量の液相が接合面の密着性に寄与したものと考えられる。そして、定荷重接合材では接合時間が10~60sの範囲内でP-bronzeの部分にポイドを伴うSnの濃化組織が生

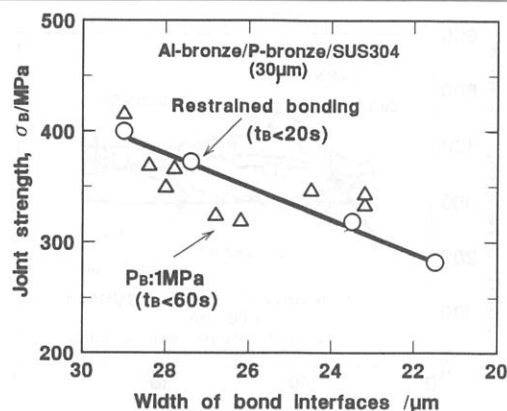


Fig. 10 Relation between joint strength and width of bond interfaces

じるため、60s以上の接合ではステンレス鋼との接合部にポイド及びNi-Snの化合物が生じたために接合界面の強度が約340MPaに低下したものと考えられる。これに対して、拘束接合では接合時間が20sまでは、接合時間の経過と共に接合部強さが低下するのは、高い接合圧力が加わるために外部に排出される液相が接合界面に多く生じるためと推察される。さらに、40s以上の接合で高い接合部強さが得られるのは、接合部に生じ接合性を阻害する液相が接合部の外周に排出されること、Alの拡散により連続した組織が得られるようになること及びNi-Snの化合物が生成しない<sup>12)</sup>ことが原因と考えられる。

### 3. 3 Cu-Sn 合金箔を用いた接合

Fig. 11はCu及びSn量の異なる厚さ100 $\mu m$ のCu-Sn合金箔を用いた拘束接合材の接合部強さと接合時間の関係を示す。Cu箔を用いた接合では、接合時間を3000sと著しく長くすると約400MPaの接合部強さが得られるものの接合時間が30s~600sの範囲では約350MPaと一定であった。また、接合時に固相のままのCu-0.28mass% Sn箔を用いた接合では接合部強さに及ぼす接合時間の影響は小さく、30s~3000sの接合時間の範囲で接合部強さは350MPaとほぼ一定の値であった。しかし、Cu-1.2mass%Sn箔を用いた接合では、接合時間が30~150sの範囲で接合部強さは約300MPa一定で、接合時間が300s以上になると接合部強さは、接合時間の経過と共に増加し、3000sの接合で約410MPaまで増加した。これに対して、固液相接合となるCu-2.5mass%Sn及びCu-5.9mass%Sn合金箔を用いた接合では、接合時間が150sの時にそれぞれ420MPa及び460MPaのピーク値が得られた。Cu-10mass%Sn箔を用いた接合では、接合温度が



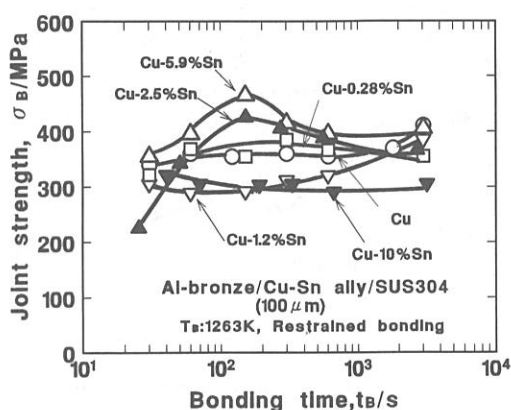


Fig. 11 Effects of bonding time and Sn content on joint strength of joints with Cu-Sn binary alloy foil

1263Kの時、状態図上では液相量が約80%となるが、このように多くの液相を生じる固液相接合では、接合時間を30s~3000sの範囲で変化させても接合部強さは約310MPa一定であった。Cu-10mass%Sn合金箔を用いた接合の破断は、ステンレス鋼との接合部及びCu-10mass%Sn箔中から生じた。このために、液相が著しく多くなる場合、液相のすべてが排出されないこと及び粒界に残留する液相により、インサート金属の劣化が生じ、高い接合部強さが得られなものと推察される。

Fig. 12は1263K×150sの条件で拘束接合したアルミニウム青銅/Cu-Sn合金接合部のマイクロ組織を示す。図より明かなように接合時に固相のままのCu-1.2mass%Sn箔を用いた接合では、アルミニウム青銅/Cu-1.2mass%Snの界面が明瞭に観察されると共に連続したパーライトの形成は認められない。これに対して、Cu-5.9mass%Sn箔を用いた接合では、接合面を介して連続した結晶が観察される。そして、Sn量が2.5mass%の箔を用いた接合では、一部連続した組織が観察されるものの接合界面は明瞭に観察される。また、接合時間が長くなると、Sn量が2.5mass%以上のCu-Sn合金とステンレス鋼の接合部に(Sn, Ni)の富化層を形成した。このために、2.5mass%以上のCu-Sn合金を用いた接合では、接合時間が長くなると接合部強さが低下したものと推察される。

### 3. 4 Cu-Ag合金箔を用いた接合

Fig. 13はCu-Ag合金箔を用いた拘束接合材の接合部強さと接合時間の関係を示す。図(a)は6mass%Ag箔を用いた結果を示す。固相接合材の接合部強さは接合時

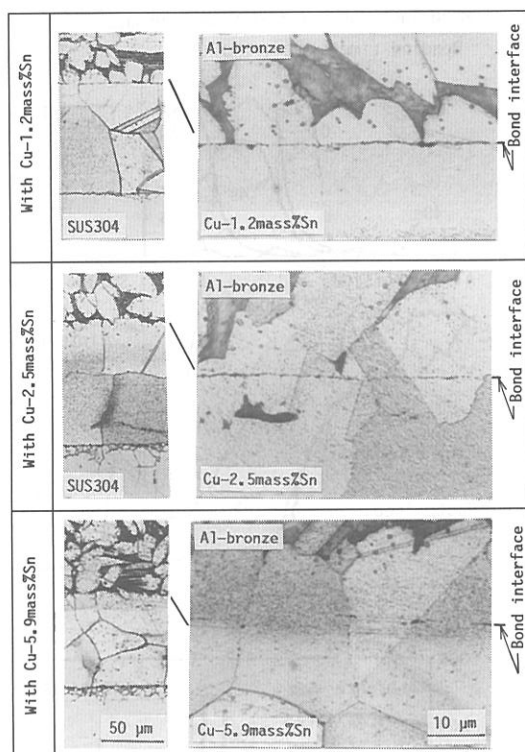


Fig. 12 Microstructures of bonded zone of joint using Cu-Sn binary alloy foil at 1263K×150s

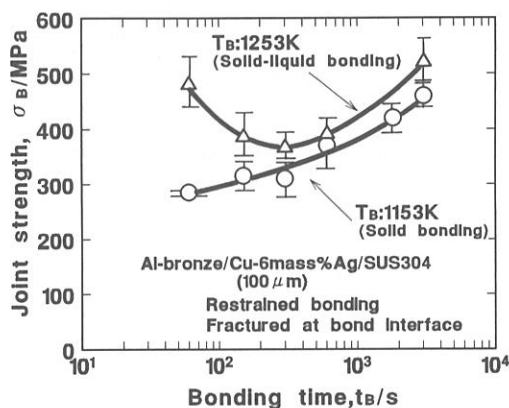


Fig. 13 Effects of bonding time and bonding temperature on joint strength of joint with insert metal of Cu-6mass%Ag foil

間の経過と共に増加し、接合時間を3000sとした場合、既報<sup>5)</sup>で得られた値約420MPaよりも高い約460MPaが得られた。これに対して、固液共存域を利用して接合を

行った接合材の接合部強さは、接合時間が60sで約480MPaが得られる。しかし、接合時間の経過と共に低下し、300sの接合で最も低い値約360MPaとなった後、接合時間が長くなると再び増加し、接合時間が3000sのとき約515MPaへと増加した。固液共存域を利用した接合材のミクロ組織等を観察した結果、P-bronzeの接合と同

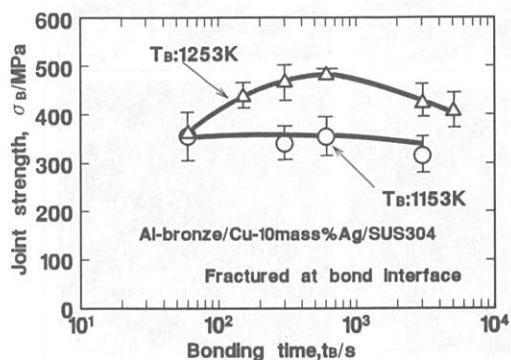
様に液相の排出及び接合界面の消失が接合部強さに大きく寄与していることが明らかになった。

Fig. 14はAg量が10、20及び40mass%のCu-Ag箔を用いた拘束固液相接合材の接合部強さと接合時間の関係を示す。接合温度が1153Kでは接合部強さに及ぼす接合時間の影響は小さく、接合時間が60～600sの範囲ではいずれの箔を用いた場合も約300～350MPaの範囲でほぼ一定であった。Cu-10mass%Ag箔を用いた接合では、接合温度を1253Kとすると、接合時間が600sのとき接合部強さのピーク値約470MPaが得られた。

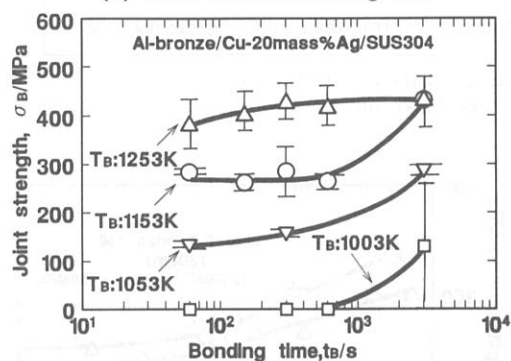
### 3. 5 接合材の疲労強さ

インサート材の固液共存域を利用した接合では、接合部の密着性及びボイドの量が少ないことから、その接合部の疲労強さは固相のままのインサート材を用いた場合よりも高くなるものと考えられる。そこで、接合時の固相の状態の接合材と固液共存域を利用した接合材の接合部の疲労強さを小野式回転曲げ疲れ試験機を用いて比較した。まず、接合時に固相のままである純Cu、Cu-1.1mass%NiあるいはCu-4mass%Ag箔を用い、それぞれの最適条件<sup>1),5)</sup>で接合を行ったところ接合部強さはそれぞれ385MPa、420MPa及び450MPaであった。これらの接合材について疲労試験を行った。Fig. 15にそのS-N曲線を示す。Cu箔及びCu-1.1mass%Ni箔を用いた接合材のS-N曲線はほぼ等しく、疲労限は125MPaが得られた。また、Cu-4mass%Ag箔を用いた接合材の疲労強さはCu箔を用いた接合材よりも高く、疲労限度は165MPaで、接合部強さの約30%の値である。

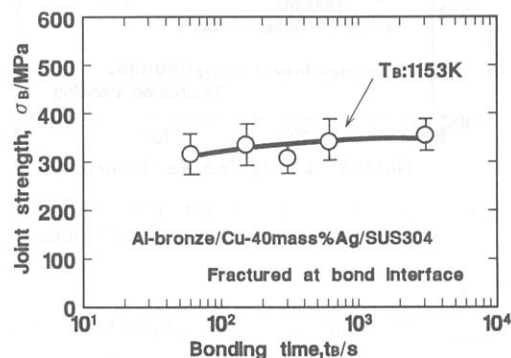
Fig. 16はCu箔及びCu-1.1mass%Ni箔を用いた拘束



(a) With Cu-10mass%Ag foil



(b) With Cu-20mass%Ag foil



(c) With Cu-40mass%Ag foil

Fig. 14 Effects of bonding time and bonding temperature on joint strength of joint using of Cu-Ag binary foil of insert metal

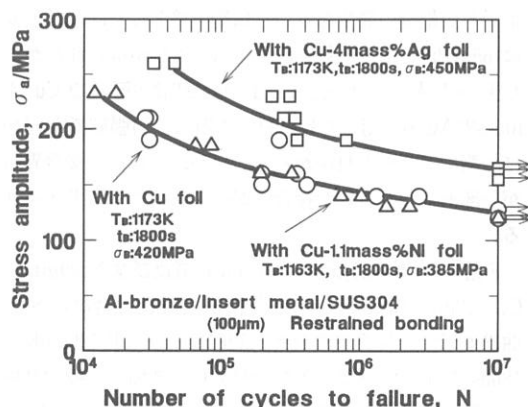


Fig. 15 S-N curves of joint with Cu, Cu-1.1mass% Ni and Cu-4mass%Ag by restrained bonding

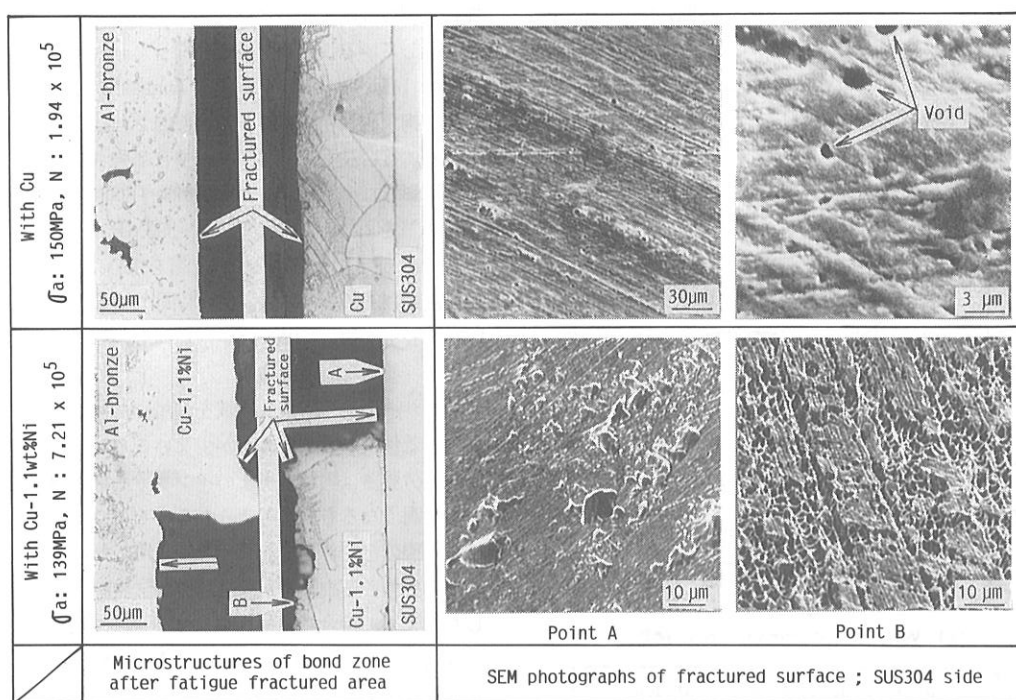


Fig. 16 Scanning electron micrographs of joint by restrained bonding using Cu and Cu-1.1mass%Ni foil

接合材の破断部近傍のミクロ組織及び疲労破断面の電顕写真を示す。Cu 箔を用いた接合材の破断は Cu 箔とアルミニウム青銅との接合界面より生じ、破面には研磨傷に相当する平行に並んだ凹凸とボイドが観察された。アルミニウム青銅と Cu 箔との接合界面には微少なボイドが観察される<sup>3)</sup>ことから、疲労試験においても接合界面のボイドが亀裂の発生あるいは伝播経路となり、疲労限度は165MPa と接合部強さの約30%の値しか得られなかったものと考えられる。Cu-1.1mass%Ni 箔及び Cu-4 mass%Ag 箔を用いた接合材の破断は、引張破断と同様に一部インサート材中から生じたが、これは、接合界面が一部消失した良好な接合部が得られるためと考えられる。

Fig. 17 は厚さ30 $\mu$ m の P-bronze 箔及び厚さ100 $\mu$ m の Cu-0.2mass%Ce 箔を用いた拘束固液相接合材の S-N 曲線を示す。接合はそれぞれ1263K $\times$ 300s 及び1136K $\times$ 1800s で行った。また、各接合材の接合部強さを疲労試験片と同じ形状にして測定したところ、それぞれ480MPa 及び430MPa が得られた。各接合材の疲労限度は約230 MPa 及び260MPa と固相接合材に比較して高い値が得

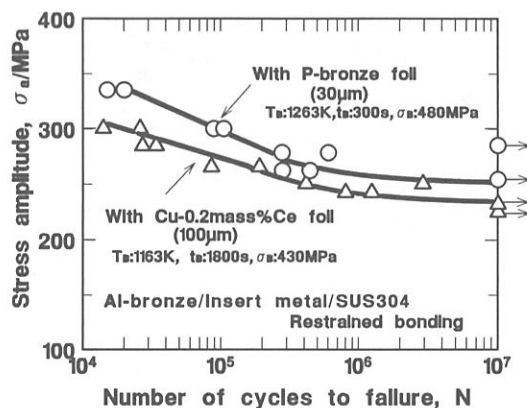


Fig. 17 S-N curves of joints with P-bronze and Cu-0.2mass%Ce foil by restrained bonding

られた。

Fig. 18 は P-bronze 箔を用いた拘束固液相接合材の破断部近傍のミクロ組織及び疲労破断面の電顕写真を示す。Cu 箔を用いた接合材の破面と異なり破面上にボイドは観察されなかった。疲労破断はステンレス鋼との接合部及びステンレス鋼側に形成される拡散層内から生じてい

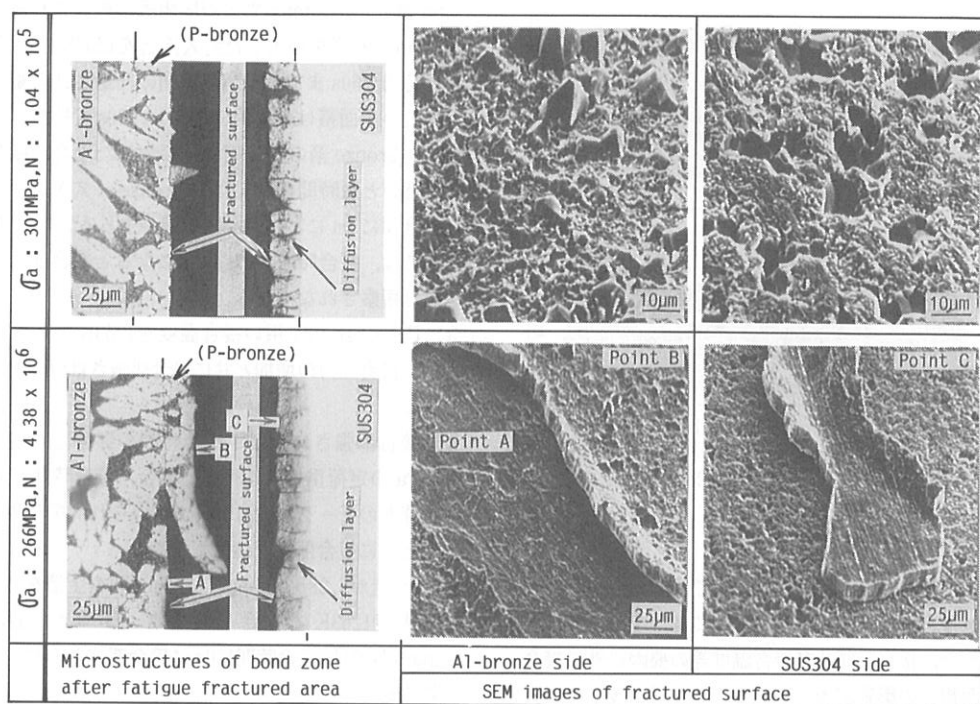


Fig. 18 Scanning electron micrographs of joint with P-bronze foil by restrained bonding

たが、また、破断が $10^6$ 回以上で生じたとき一部アルミニウム青銅とP-bronzeの接合部から疲労破断を生じ、その破面には、固相接合材の疲労破面と同様に研磨傷に相当する平行な凹凸が観察された。

以上のことから、固液相接合材の疲労強さが、固相接合材と比較して高いのはアルミニウム青銅とインサート金属との接合界面が消失するためと考えられる。そこで、次に固相接合材と固液相接合材の疲労強さが、前述したように異なる傾向が一般的なものであるのか、評価を行うためにそれぞれの接合材について、接合部強さと疲労限度の関係を検討した。

Fig. 19はCu及びP-bronze箔を用いた固相接合材及び固液相接合材の接合部強さと疲労限度の関係を示す。いずれの接合材も引張強さの増加と共に疲労限度は増加する。また、それぞれの疲労強度と接合部強さの関係は明瞭に区分され、固液相接合材の疲労限度の方が高い値が得られる。各接合材の最も高い疲労限度の値は、固相接合材で約190MPaであるのに対して、固液相接合材では約265MPaの値が得られた。

### 3. 6 接合面の表面粗さの影響

インサート材の固液共存域を利用した接合では、イン

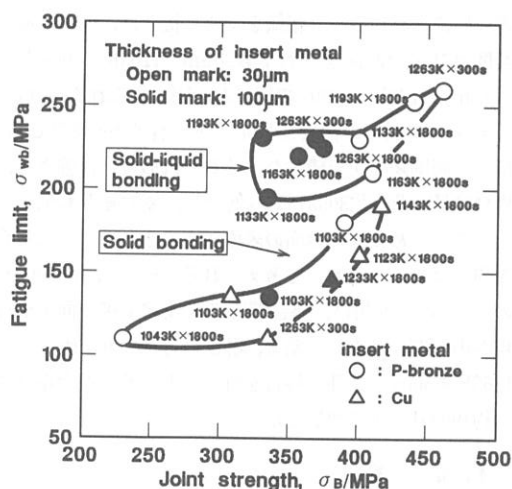


Fig. 19 Relation between fatigue limit and joint strength of joints with P-bronze and Cu foil by restrained bonding

サート材の劣化を招く液相の排出が生じること及びインサート材の変形が容易に生じるために接合面の密着が良好に生じ高い接合部強さが得られることが明らかになった。このために、液相の排出が十分に生じない場合、その接

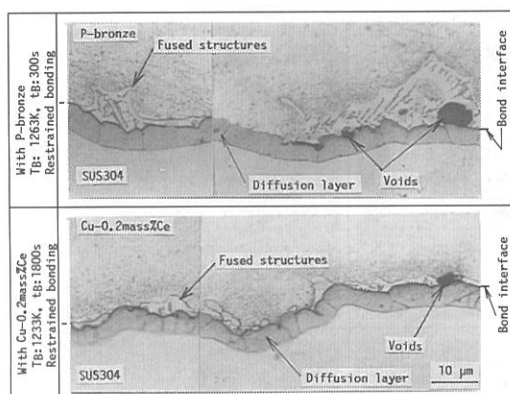


Fig.20 Effect of roughness of bond surface on microstructures of bonded zone of joints with P-bronze and Cu-0.2mass%Ce foil

合部強さは約300MPa程度の低い値であった。このように液相が接合部に残留する原因としては、全項までに述べたような、接合時間及び接合温度等の要因以外に接合面の表面粗さの影響が考えられる。そこで、接合面の表面粗さを約Rz4 $\mu$ mとした接合を行った。

Fig. 20はP-bronze及びCu-0.2%Ce箔を用いた拘束固液相接合材のミクロ組織を示す。接合は、箔厚、接合温度及び接合時間をそれぞれ30 $\mu$ m $\times$ 1263K $\times$ 300s及び100 $\mu$ m $\times$ 1136K $\times$ 1800sで行った。図に見られるように、ステンレス鋼との接合部はボイドを伴うSn及びCeに富んだ凝固組織を形成した。それぞれの接合部強さは、約410MPa及び約305MPaへ低下し、疲労強さも低下した。このために、接合面の表面粗さを小さくすると接合部強さは高くなるものと考えられる。そこで、厚さ30 $\mu$ mのP-bronzeを用い、接合部強さに及ぼす接合面の表面粗さの影響を調査して結果、粗さを約Rz0.04 $\mu$ mとして1263K $\times$ 300sの条件で接合を行ったところ、接合部強さは約490MPaまで増加した。

#### 4. 結 言

拡散接合を利用したアルミニウム青銅とオーステナイト系ステンレス鋼の接合材の接合部強さの改善を目的に、インサート金属の固液共存域を利用した接合を行った。インサート金属としては、P-bronze, Cu-Sn, Cu-Ag及びCu-0.2mass%Ce箔を用いた。得られた結果を要約すると次の通りである。

1) P-bronzeを固液相域に加熱した場合、結晶粒界に

Sn濃度が約40mass%の凝固組織が形成される。また、P-bronze箔を挿入した封入接合を1263Kで行うと保持時間が60sまでは、加熱時間の経過と共に凝固組織の占める面積は直線的に増加し、60sで約24%となる。

2) P-bronze箔の固液相域で接合した場合、接合圧力が低いと短時間接合ではP-bronze/ステンレス鋼の接合部にSnに富んだ凝固組織が生じる。また、拘束接合では、接合時間が40s以上になると接合部に凝固組織は観察されなくなる。

3) P-bronze箔を用い接合温度を1263Kとした接合では、接合圧力の増加と共に接合部強さは直線的に増加する。

4) 接合部強さに及ぼす接合時間の影響としては、1MPaの定荷重接合を行った場合、接合時間が0sで接合強度のピーク値約415MPaが得られ、接合時間の経過と共に接合部強さは低下する。

5) Sn量が0.28~10mass%のCu-Sn合金箔を用い、接合温度1263Kで接合したとき、Sn量が2.5及び5.9mass%では、接合時間150sに接合部強さのピーク値が得られる。

6) Ag量が6~40mass%のCu-Ag合金箔を用いた接合では、Ag量が6mass%の箔を用いて1263K $\times$ 3000sの条件で接合したとき、接合部強さのピーク値約510MPaが得られる。

7) 接合材の引張強さと疲労限度の間には直線関係が見られた。P-bronzeの固液共存域を利用した接合材の疲労限度は、Cu箔及びP-bronzeの固相域を利用した接合材よりも高い疲労限度が得られる。

#### 参考文献

- 1) 芹野, 益本, 浅田, 西尾, 迎; 接合性に及ぼす酸素の影響, 溶接学会論文集, Vol. 7 (1989), No. 2, 181
- 2) 芹野, 益本, 浅田, 本田, 西尾, 迎; 含Si軸受用アルミニウム青銅とオーステナイト系ステンレス鋼の固相接合, 溶接学会論文集, Vol. 4 (1986), No. 1, 60
- 3) 益本, 芹野, 西尾, 浅田, 迎; 拡散層の形成と接合強度, 溶接学会論文集, Vol. 6 (1988), No. 1, 104
- 4) 迎, 西尾, 益本, 黒木; 接合用インサート材, 特願平1-2340995
- 5) 益本, 浅田; 接合性に及ぼす合金元素の影響, 本誌, No. 14 (1990), 9

- 6) 益本, 浅田; 接合性に及ぼすインサート金属の影響, 本誌, No. 12 (1988), 11
- 7) 中尾, 西木, 篠崎, 姜, 重田; 合金粉末を用いた液相インサート金属拡散接合法の接合現象, 溶接学会論文集, Vol. 9 (1991), No. 4, 92
- 8) 舟木, 和知, 梶原, 加藤, 松坂, 志田; Cu-Ti 合金インサート材による Cu と SUS304 の液相拡散接合, 溶接学会論文集, Vol. 6 (1988), No. 2, 219
- 9) 松田, 中川, 張; 瞬間液相接合法の開発とその異材及び同種材接合への適用, 溶接学会九州支部特別講演, 1987年
- 10) 圓城, 池内; Al-Cu-Mg 系2017合金の拡散接合, 溶接学会論文集, Vol. 2 (1984), No. 4, 599
- 11) T. B. Massalski, etc; Binary Alloy Phase Diagrams, Vol. 1, ASM, (1986), 705
- 12) 益本, 浅田, 西尾, 加藤, 迎, ; りん青銅箔によるアルミニウム青銅とステンレス鋼の固液相接合, 溶接構造シボジウム'93講演集, 投稿中